

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/005864

International filing date: 29 March 2005 (29.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-098102
Filing date: 30 March 2004 (30.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 12 May 2005 (12.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application: 2004年 3月30日

出願番号 Application Number: 特願2004-098102

パリ条約による外国への出願に用いる優先権の主張の基礎となる出願の国コードと出願番号

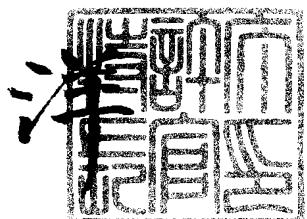
The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

出願人 Applicant(s): 東レ株式会社

2005年 4月20日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願
【整理番号】 44K00430-A
【提出日】 平成16年 3月30日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 B29C 70/10
【発明者】
【住所又は居所】 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社愛媛工場内
【氏名】 浅原 信雄
【発明者】
【住所又は居所】 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社愛媛工場内
【氏名】 小谷 浩司
【発明者】
【住所又は居所】 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社愛媛工場内
【氏名】 和田原 英輔
【特許出願人】
【識別番号】 000003159
【住所又は居所】 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号
【氏名又は名称】 東レ株式会社
【代表者】 横原 定征
【電話番号】 077-533-8175
【手数料の表示】
【予納台帳番号】 005186
【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 図面 1
【物件名】 要約書 1

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

少なくとも強化纖維糸条によって形成された強化纖維基材を複数枚積層してなるプリフォームであって、プリフォーム内の強化纖維基材層間に熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料を有し、かつ、プリフォームの厚み方向に複数枚の強化纖維基材を貫通する孔が形成されていることを特徴とするプリフォーム。

【請求項 2】

プリフォームにおける強化纖維体積率 $V_{p\ f}$ が、45～62%の範囲内であることを特徴とする請求項1に記載のプリフォーム。

【請求項 3】

プリフォームにおける強化纖維体積率 $V_{p\ f}$ が、該プリフォームを成形して得られるFRPの強化纖維体積率 V_f に対して、 $V_f - 5 \leq V_{p\ f} \leq V_f + 5$ の範囲内にあることを特徴とする請求項1または2に記載のプリフォーム。

【請求項 4】

樹脂材料は、プリフォームに対して、1～20重量%の範囲内であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 5】

樹脂材料は、粒子の形態を有するものであることを特徴とする請求項1～4のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 6】

樹脂材料は、有機纖維糸によって形成された有機纖維布帛の形態を有するものであることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 7】

強化纖維基材は、強化纖維糸条が一方向に並行に配列された状態で形態が安定化された一方向シートであることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 8】

強化纖維基材は、強化纖維糸条が一方向に並行に配列された形態を有し、かつ他方向には補助糸が配列された織組織を有する一方向性織物であることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 9】

強化纖維基材は、強化纖維糸条が長さ方向と幅方向に並行に配列された織り組織を有する二方向織物であることを特徴とする請求項1～8のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 10】

強化纖維基材は、強化纖維糸条が並行に配列されて層構成をなし、これらがステッチ糸で一体化されている多軸ステッチ基材であることを特徴とする請求項1～9のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 11】

プリフォームの面内に、強化纖維基材の積層枚数が異なる段差部を有することを特徴とする請求項1～10のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 12】

プリフォーム面内の任意の部位に、局所的に貫通孔が形成されていることを特徴とする請求項1～11のいずれかに記載のプリフォーム。

【請求項 13】

請求項1～12のいずれかに記載のプリフォームに、マトリックス樹脂が含浸されて硬化されたものであることを特徴とするFRP。

【請求項 14】

FRPにおける強化纖維体積率 V_f が、45～70%の範囲内であることを特徴とする請求項13に記載のFRP。

【請求項 15】

FRPの用途は、航空機、自動車、船舶の輸送機器のいずれかにおける一次構造部材、二

次構造部材、外装部材または内装部材であることを特徴とする請求項 1 3 または 1 4 に記載の F R P。

【請求項 1 6】

少なくとも次の工程 (A) ~ (E) を順次経て製造することを特徴とするプリフォームの製造方法。

(A) 少なくとも強化纖維糸条によって強化纖維基材を複数枚形成し、これらの基材をプリフォーム型内に複数枚積層する積層工程。

(B) 積層された積層体をプリフォーム型内に配置する配置工程。

(C) 積層体を加熱し、強化纖維基材と樹脂材料とを含む各層を、少なくとも部分的に接着する加熱工程。

(D) 積層体を冷却する冷却工程。

(E) プリフォームの厚み方向に、複数枚の強化纖維基材を貫通する孔を形成させる穿孔工程。

【請求項 1 7】

少なくとも次の工程 (F) ~ (K) を経て製造することを特徴とするプリフォームの製造方法。

(F) 少なくとも強化纖維糸条によって形成された強化纖維基材を複数枚成形し、これをプリフォーム型内に複数枚積層する積層工程。

(G) 積層体の厚み方向に、複数枚の強化纖維基材をピンで貫通させる積層体の貫通工程。

(H) 積層体をプリフォーム型内に配置する配置工程。

(I) 積層体を加熱し、強化纖維基材と樹脂材料とを含む各層を、少なくとも部分的に接着する加熱工程。

(J) 積層体を冷却する冷却工程。

(K) ピンを除去する除去工程。

【請求項 1 8】

(G) 貫通工程におけるピンが、プリフォーム型あるいは積層体の上に配設される加圧板 9 と一体化されていることを特徴とする請求項 1 7 に記載のプリフォームの製造方法。

【請求項 1 9】

(G) 貫通工程におけるピンの長さを、所望のプリフォームの板厚と同等に設定し、積層体の上に配設される加圧板 9 とプリフォーム型の間でピンをブリッジさせて、プリフォームの板厚を制御することを特徴とする請求項 1 7 または 1 8 に記載のプリフォームの製造方法。

【請求項 2 0】

請求項 1 6 の (B) または請求項 1 7 の (H) の配置工程において、配置するプリフォーム型の一方がバッゲ材であり、もう一方が雄型または雌型であることを特徴とする請求項 1 6 ~ 1 9 のいずれかに記載のプリフォームの製造方法。

【請求項 2 1】

請求項 1 6 の (C) または請求項 1 7 の (I) の加熱工程において、予め (B) または (H) の配置工程で積層体をプリフォーム型内に密閉してプリフォーム型内を大気圧以下に減圧することにより、大気圧でプリフォームを加圧することを特徴とする請求項 1 6 ~ 2 0 のいずれかに記載のプリフォームの製造方法。

【請求項 2 2】

請求項 1 ~ 1 2 のいずれかに記載のプリフォームを用いて、少なくとも次の工程 (L) ~ (N) を経て、F R P を製造することを特徴とする F R P の製造方法。

(L) プリフォームを成形型に配置するセット工程。

(M) 液体化しているマトリックス樹脂を、成形型に注入してプリフォームにマトリックス樹脂を含浸させる注入工程。

(N) マトリックス樹脂を固化させる固化工程。

【請求項 2 3】

(L) のセット工程において、成形型が少なくとも雌型または雄型のいずれかとバッゲ材とによって形成されることを特徴とする請求項 23 に記載のF R P の製造方法。

【請求項 24】

(L) のセット工程において、プリフォームの最表面に樹脂拡散媒体を積層し、(M) 注入工程において、まずマトリックス樹脂を優先的に樹脂拡散媒体に注入した後に、貫通孔でプリフォームの厚み方向に含浸させ、貫通孔からプリフォームの面内方向に含浸させて、プリフォーム全体を含浸させることを特徴とする請求項 23 または 24 に記載のF R P の製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】プリフォーム、F R P およびそれらの製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、繊維強化プラスチック（以下、F R P と言う。）の成形に用いるプリフォーム、それらから得られるF R P 及びそれらの製造方法に関する。

【0002】

より詳しくは、マトリックス樹脂の含浸性に優れ、かつ、力学特性を高く発現し、品質が安定したF R P が得られるプリフォーム、それから得られるF R P およびそれらの製造方法に関する。

【背景技術】

【0003】

周知の通り、軽量で高強度な素材として、F R P が各種産業分野で注目されており、中でも炭素繊維強化プラスチック（C F R P ）がその優れた機械特性等から注目されている。特に航空機の分野においては、適用部位が拡大されており、今後さらなる拡大が見込まれている素材である。

【0004】

ところで、連続した炭素繊維を強化繊維とするからなる繊維強化プラスチックは、繊維軸面内方向の機械的特性には優れるが、炭素繊維シートが積層されたC F R P 板の厚さ方向に部分的な衝撃が加わると、衝撃によってC F R P 板の層間にクラックが発生し層間が剥離することがあり、層間を強化するための各種方法が考案してきた。

【0005】

かかるC F R P 板を用いたF R P は、その代表的な製造方法として、通常、強化繊維基材を成形すべきF R P 形状に予め積層したプリフォームを用いるが、マトリックス樹脂を注入し、成形する方際に次のような問題点がある。すなわち、一般にプリフォーム内へのマトリックス樹脂の含浸速度はプリフォームの空隙率（プリフォーム内の空隙の割合）に大きく依存するため、強化繊維体積含有率（かさ密度）が高い状態（いわゆるニアネットシェイプ）では、空隙率が小さいために含浸速度が遅くなる。また、同じ空隙率であっても、強化繊維基材の面内の方向よりも、板厚方向への含浸速度が極めて遅いという特徴がある。したがって、C F R P の注入成形では、特にニアネットシェイプ成形や厚肉板の成形をする際には、プリフォーム内への含浸速度が遅いため、成形のサイクルタイムが長くなり、生産性が低くなる問題があり、また、最悪の場合には、樹脂のポットライフの範囲内ではプリフォーム全体への含浸が完了せず、成形品に未含浸部分を残すと言う問題があった。

【0006】

この場合の基材層間を強化する手段として、特許文献1に示されるように、プリフォーム内の強化繊維層間に熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料を付加し、層間の強度を向上させる方法がある。この樹脂材料は、層間強化の効果だけではなく、プリフォームの強化繊維基材同士を接着・固定する機能も合わせ持っているため、プリフォームの製造上も非常に有利な材料である。

【0007】

しかし、該プリフォームの空隙率は、樹脂材料が付与されていない一般的な強化繊維基材と同じ強化繊維体積含有率で比較した場合には、プリフォーム内の樹脂材料の体積分、プリフォーム内の空隙率が小さくなるため、含浸性が劣ると言う問題点があった。また、該プリフォームの強化繊維の体積含有率（かさ密度）が特に高い状態においては、如何なる形態の樹脂材料であっても、最も層間が薄くなる形態、すなわち、フィルム状となる場合があるため、板厚方向に流れるマトリックス樹脂が強化繊維層に含浸するのを層間の樹脂材料が阻害する問題があった。すなわち、該プリフォームは、各種力学特性は非常に優れるものの、特に強化繊維体積含有率が高い状態、いわゆるニアネットシェイプ成形を行う場合、あるいは、厚肉のプリフォームを成形する場合には、マトリックス樹脂の含浸工

程においてに多大な時間を要する問題があった。

【0008】

また、特許文献2のように、ニードルパンチにより強化繊維を起毛処理して、起毛された糸条繊維や短繊維ウェブが層間に押し込まれ、層同士がブリッジングされることにより層間せん断強度、面外強度を向上させる方法もある。この方法では、起毛された繊維による毛細管現象により板厚方向の含浸性が向上し、また、起毛された繊維によるアンカー効果により層間強度を向上させることができる。しかし、この手法の場合、ニードルパンチの際にあえて強化繊維の一部を切断して起毛処理するため、切断された繊維分の強度が低下する。また、その部分に応力集中を起こしやすくなるため、層間強度の向上効果はあるものの、その副作用として強化繊維量に依存する一方向の引張強度や圧縮強度のような基本的な機械的特性が低下すると言う問題点がある。

【特許文献1】特開2003-80607号公報

【特許文献2】特開2003-39429号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明の目的は、前記従来技術の課題を解決し、プリフォームの板厚方向の含浸性を向上させることにより、各種力学特性と、マトリックス樹脂の含浸性の両者ともに優れ、品質がより安定したFRPおよびそれに使用されるプリフォーム並びにこれらを高い生産性で製造し得る方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明は、上記課題を達成するため、次の各手段を採る。

【0011】

本発明のプリフォームは、少なくとも強化繊維糸条によって形成された強化繊維基材を複数枚積層してなるプリフォームであって、プリフォーム内の強化繊維基材層間に熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料を有し、かつ、プリフォームの厚み方向に複数枚の強化繊維基材を貫通する孔が形成されていることを特徴とする。

【0012】

また、本発明のプリフォームの第1の製造方法は、少なくとも次の工程(A)～(E)を順次経て製造することを特徴とする。

【0013】

(A) 少なくとも強化繊維糸条によって強化繊維基材を複数枚形成し、これらの基材をプリフォーム型内に複数枚積層する積層工程。

【0014】

(B) 積層された積層体をプリフォーム型内に配置する配置工程。

【0015】

(C) 積層体を加熱し、強化繊維基材と樹脂材料とを含む各層を、少なくとも部分的に接着する加熱工程。

【0016】

(D) 積層体を冷却する冷却工程。

【0017】

(E) プリフォームの厚み方向に、複数枚の強化繊維基材を貫通する孔を形成する穿孔工程。

【0018】

また、本発明のプリフォームの第2の製造方法は、少なくとも次の工程(F)～(K)を経て製造することを特徴とする。

【0019】

(F) 少なくとも強化繊維糸条によって形成された強化繊維基材を複数枚成形し、これをプリフォーム型内に複数枚積層する積層工程。

【0020】

(G) 積層体の厚み方向に、複数枚の強化繊維基材をピンで貫通させる積層体の貫通工程。

【0021】

(H) 積層体をプリフォーム型内に配置する配置工程。

【0022】

(I) 積層体を加熱し、強化繊維基材と樹脂材料とを含む各層を、少なくとも部分的に接着する加熱工程。

【0023】

(J) 積層体を冷却する冷却工程。

【0024】

(K) ピンを除去する除去工程。

【0025】

さらに、本発明のFRPの製造方法は、請求項1～12のいずれかに記載のプリフォームを用いて、少なくとも次の工程(L)～(N)を経て、FRPを製造することを特徴とする。

【0026】

(L) プリフォームを成形型に配置するセット工程。

【0027】

(M) 液体化しているマトリックス樹脂を、成形型に注入してプリフォームにマトリックス樹脂を含浸させる注入工程。

【0028】

(N) マトリックス樹脂を固化させる固化工程。

【発明の効果】

【0029】

本発明に係るプリフォーム、FRPおよびそれらの製造方法によれば、各種力学特性、成形時の樹脂の含浸性の両者ともに優れ、品質が安定したFRPを高い生産性で得ることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0030】

以下、本発明の最良の実施の形態を本発明の一実施例の図面を参照しながら説明する。

【0031】

図1は、本発明のプリフォームの一実施態様を説明する斜視図であり、図2は図1のプリフォームのA-A線矢視断面図、図3は図2のプリフォームの変形例に係る斜視図である。

【0032】

図1において、本発明のプリフォーム1は、連続した例えば、炭素繊維やアラミド繊維等の強化繊維糸条を平行に引き揃えて形成された強化繊維基材2（詳細後述）が、複数枚厚み方向に積層されており、各層間には熱可塑性樹脂を主成分とする例えば、ポリアミド、ポリスルファンなどの樹脂材料3（詳細後述）を有している。そして、本発明のプリフォームの特徴とすべき点は、プリフォーム1の厚み方向に、少なくとも複数枚の強化繊維基材2を貫通する貫通孔4を有する点である。

【0033】

図2に示すように、この貫通孔4は、プリフォーム1の板厚方向にその裏面まで貫通していることが、成形時にマトリックス樹脂の板厚方向の流路が確保されるために好ましい。また、応力集中を分散させる観点から、図3に示すように、複数枚の強化繊維基材2を貫通した後、残る強化繊維基材2については別の部位に設けた複数個の貫通孔4を経て裏面に到達するものであっても良い。

【0034】

貫通孔4の大きさ、形状、ピッチとしては、マトリックス樹脂が充分に板厚方向に流動

することができ、成形品が所望の機械特性を達成できれば、特に限定するものではないが、具体的には貫通孔4は、使用する強化纖維基材とマトリックス樹脂による含浸特性、FRPに要求される強度から以下に述べる点を考慮して設定されることが好ましい。

【0035】

貫通孔4を大きく設定した場合、FRPに成形した時にレジンリッチ部となり応力集中を起こす可能性がある。また、周知の通り、FRPの強度は纖維の配交角に依存するため、貫通孔4の強化纖維の主軸に垂直な方向の径が大きくなるにしたがい、纖維の局所的な配交角度が変化して、強度への影響が大きくなるため、マトリックス樹脂が充分に含浸する大きさの範囲内で最小限に設定することが好ましい。

【0036】

貫通孔4の形状としては、前記機能を満足すれば特に限定されるものではない。局所的な配交角度のずれを小さくすると言う点からは、強化纖維の主軸に垂直な方向の径を小さくする方が好ましく、例えば橢円形状などにしても良い。

【0037】

貫通孔4のピッチとしては、使用する強化纖維基材とマトリックス樹脂、貫通孔4の形状や大きさなどから設定することが好ましい。例えば、貫通孔4に流入したマトリックス樹脂が強化纖維基材2の面内方向に広がり、複数個の貫通孔4から強化纖維基材2全体に樹脂が充分に含浸できるようなピッチに設定することが好ましい。なお、樹脂の流動形態に関しては、製造方法の説明のところで詳しく述べる。

【0038】

本発明におけるプリフォーム1の強化纖維体積含有率V_{p f}は45～62%の範囲内であることが好ましい。一般に、マトリックス樹脂の強化纖維への含浸性は、プリフォーム1内の空隙率、ひいては強化纖維の体積含有率に依存するため、本発明の効果は、強化纖維体積含有率が高い領域において特に有効である。強化纖維体積含有率V_{p f}が45%未満の場合は、プリフォーム1内の空隙率が充分に高いため、貫通孔4の効果が小さくなる。また、強化纖維体積含有率V_{p f}が62%を超えると製造が困難になる。また、プリフォーム1における強化纖維体積含有率V_{p f}と、FRPの強化纖維体積含有率V_fとの関係は、V_f-5≤V_{p f}≤V_f+5の範囲内にあるのが好ましい。

【0039】

いわゆるニアネットシェイププリフォームの場合には、より本発明の効果がより大きく発現されるため好適である。

【0040】

本発明で使用する強化纖維基材2としては、炭素纖維、ガラス纖維などの無機纖維や、ポリアミド、アラミド等の有機纖維を強化纖維とする、織物（一方向性、二方向性、多軸）、編物、組物、一方向に引き揃えられたシート（一方向性シート）、一方向性シートを2層以上重ね合わせた多軸シートが挙げられる（以下、上述した織物やシート等を総称して布帛という。）。これら布帛は、スティッチ糸、結節糸、粗布、バインダー等の樹脂等による各種接合手段により複数の物を一体化した物であっても良い。かかる強化布帛としての一方向シートは、強化纖維糸条が一方向に配列した状態で、樹脂材料又はその他の手段によって形態安定化されたものである。

【0041】

かかる強化布帛としての一方向性織物は、強化纖維糸条が強化布帛の長さ方向つまり縦方向に配列し、横方向には強化纖維糸条より細い補助糸が配列して交錯し、織組織を構成するものである。かかる強化布帛としての二方向性織物は、強化纖維糸条が強化布帛の長さ方向と幅方向に配列して交錯し、織組織を構成するものである。

【0042】

かかる強化布帛としての多軸スティッチ基材は、例えば、まず下面から長さ方向に対して+α°方向に強化纖維糸条が平行に配列して+α°層を構成し、次いで幅方向に強化纖維糸条が平行に配列して90°層を構成し、次いで長さ方向に対して-α°方向に強化纖維糸条が平行に配列して-α°層を構成し、次いで長さ方向に強化纖維糸条が平行に配列し

て θ ° 層を構成し、これらの互いに配列方向が異なる4つの層が積層された状態で、ステッチ糸によって縫合一体化されているものである。ここでは、多軸スティッチ基材の強化繊維の構成が $+ \alpha$ ° 層/ 90 ° 層/ $- \alpha$ ° 層/ 0 ° 層の4層構成について説明したが、これに限定する物ではない。

【0043】

有機纖維布帛としては、例えば、不織布、マット、ネット、メッシュ、織物、編物、短纖維群等があり、これらを組み合わせても良い。樹脂材料3は、強化纖維基材2と接着されていることが好ましい。

【0044】

樹脂材料3の形態については、強化纖維の層間強度を高める機能、強化纖維基材2間の接着性を有するものであれば特に限定するものでは無い。樹脂材料3の形態としては、例えば、粒子、有機纖維布帛、またはフィルムの形態を有するものを使用することができる。プリフォームにおける強化纖維体積率を高く出来ること、使用できる熱可塑性樹脂の種類が多様である点から、粒子の形態がより好ましく、平均粒子直径としては $1 \sim 500 \mu\text{m}$ の範囲内であることが好ましい。

【0045】

樹脂材料3が熱可塑性樹脂の場合は、プリフォーム1を加熱・加圧して樹脂材料3による強化纖維層2の拘束を開放して板厚を変化させ、所望の板厚で冷却・除圧することにより強化纖維基材2を樹脂材料3で拘束することによりプリフォームの強化纖維体積含有率Vpfの制御が可能である。

【0046】

このような熱可塑性樹脂としては、マトリックス樹脂と相性が良いものを選択することができる。例えば、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリスルfonyl、ポリエーテルスルfonyl、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルニトリル、ポリエーテルエーテルケトン、及びポリエーテルケトンケトン、これらの変性樹脂、共重合樹脂などを使用することができる。また、かかる樹脂材料3は、プリフォーム形態の時には低いガラス転移点で、FRPに成形された後は高いガラス転移点になっていることがプリフォーム1を作成するのに好適である。例えば、熱硬化性樹脂などの熱可塑性樹脂以外の副成分を有することができます。

【0047】

前記プリフォームの強化纖維含有率を制御する観点から、樹脂材料3をプリフォーム1に対して $1 \sim 20$ 重量%の範囲内で有していることが好ましい。樹脂材料3が1重量%未満の場合は、層間強度の向上効果が小さく、また、プリフォーム1の強化纖維体積含有率の制御幅が小さいという問題点がある。また、樹脂材料3が20重量%を超える場合は、樹脂材料3の体積が大きくなり、強化纖維体積含有率が高くできない問題が発生する。なお、本発明でいうプリフォーム1における強化纖維体積含有率Vpfとは、次式で求めた値をいう。なお、ここで用いた記号は下記に準ずる。ここで、測定に供するプリフォームは、プリフォームのスプリングバック量が実質的に飽和したものとする。

【0048】

$$V_{pf} = (W_1 \times 100) / (\rho \times T_1) \quad (\%)$$

ここで、W1：プリフォームの 1 cm^3 あたりの強化纖維の重量 (g/cm^3)

ρ ：強化纖維の密度 (g/m^2)

T1：1気圧の荷重下で測定したプリフォームの板厚 (cm)

次に、本発明のプリフォームの変形例について、図面を参照しながら説明する。

【0049】

図4は、図1とは異なる態様の変形例に係るプリフォームの斜視図、図5は図4のプリフォームのB-B線矢視の断面図である。

【0050】

図4、5に示すように、この変形例のプリフォームは、図1のプリフォーム1の上に、

強化繊維基材2の外形寸法とその積層枚数が異なる段差部4-1、すなわち薄肉部4-2の上にいわゆるパッドアップ部4-1としてのプリフォームを設けたものである。この変形例のプリフォームに対しても、プリフォーム全体に貫通孔を設けても良いし、図4、5に示すように、局所的に裏面にまで貫通する貫通孔4を設けても良い。従来、このようなパッドアップ部4-1が存在するプリフォーム1の場合、例えば、樹脂の注入成形の場合などは、プリフォームの面内で板厚方向にマトリックス樹脂が含浸する距離が異なるため、パッドアップ部4-1に樹脂が含浸する時間が薄肉部4-2に比較して非常に長くなっていた。

【0051】

したがって、パッドアップ部4-1での含浸途中に、樹脂のポットライフを超過した場合や、先に薄肉部4-2を含浸したマトリックス樹脂によりパッドアップ部4-1内の強化繊維と真空ラインが遮断されて真空圧が維持できなくなった場合には、成形後に未含浸部が残ることがよくあった。しかし、本発明のプリフォーム1においては、貫通孔4に充填されたマトリックス樹脂が、直ちに各基材2の平面方向に進入し、含浸するのでこのような問題は生じない。貫通孔4は、前述したようにプリフォーム1の全面に貫通孔を設けても良いし、貫通孔にできるレジンリッチ部を減らす視点からは、パッドアップ部4-1だけに局所的に貫通孔4を設けることも効果がある。また、貫通孔の配置とその外径を適宜変えることにより、パッドアップ部4-1と薄肉部4-2のマトリックス樹脂の含浸時間を同じにすることも可能であるし、パッドアップ部4-1を先に含浸させることにより、未含浸を防止することもできる。

【0052】

次に、本発明にかかるプリフォームを使用したFRPの最良の形態について図面を参照しながら説明する。図6は本発明の一実施態様に係るFRPの斜視図である。

【0053】

本発明のFRP6-1は、上述のプリフォーム1に、マトリックス樹脂が含浸され、硬化したものである。かかるマトリックス樹脂の好ましい例としては、例えば、熱硬化性樹脂、RIM用熱可塑性樹脂等が挙げられるが、中でも注入成形に好適であるエポキシ、フェノール、ビニルエステル、不飽和ポリエステル、シアネットエステル、ビスマレイミドおよびベンゾオキサジンから選ばれる少なくとも1種であるのが好ましい。

【0054】

かかるFRP6-1における強化繊維体積率Vfとしては、45～70%の範囲内であると、前述の本発明の効果を高く発現できるため好ましい。より好ましくは45～62%、さらに好ましくは50～60%の範囲内である。なお、FRPにおける強化繊維体積率Vfとは、次式で求めた値をいう（単位は%）。なお、ここで用いた記号は下記のとおりである。

【0055】

$$V_f = (W_2 \times 100) / (\rho \times T_2) \quad (\%)$$

ここで、W₂：FRP 1 cm²当たりの強化繊維の重量 (g/cm²)

ρ：強化繊維の密度 (g/cm³)

T₂：FRP の厚さ (cm)

かかる構成を備えた本発明のFRPは優れた力学特性を有し、かつ軽量であるため、その用途が航空機、自動車、船舶の輸送機器のいずれかにおける一次構造部材、二次構造部材、外装部材または内装部材として好ましいものである。

【0056】

次に、本発明にかかるプリフォームの製造方法の第1の実施態様について説明する。

【0057】

図7、8は、本発明のプリフォームの製造方法の第1の実施態様にかかる断面図であり、図7はそのうちのプリフォーム成形工程の断面図、図8はその後の穿孔工程の断面図である。

【0058】

(A) 積層工程

図7に示すように、まず平板状のプリフォーム型71の上に、少なくとも一方の表面に熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料3を有する強化繊維糸条によって形成された強化繊維基材2を複数枚積層する。

【0059】

(B) 配置工程

次に、前記プリフォーム型71の上に配置した、強化繊維基材2の上に加圧板9を載置し、さらにその上からバッグ材7で覆い、その外周部をシーラント5で密閉する。そして、最下層の強化繊維基材に通気材料8aを接続し、排気ライン8b経由で、系外に設けた真空ポンプ6と連通する。しかる後に真空ポンプ6を運転し、バッグ材7内部を減圧状態にすることにより、プリフォーム1の全体に対し、バッグ材7内外の差圧による大気圧を負荷させ、プリフォーム型71は、その一方がバッグ材7であり、もう一方が雄型または雌型のいずれかであってもよいし、バッグ材7を用いない雄型および雌型であってもよい。また、プリフォーム型71は成形型として用いられても何ら問題はなく、特に大型FRPの場合には、設備費を安価にするためプリフォーム化と成形とに兼用できる型を用いるのが好ましい。バッグ材7としては、例えば、フィルム、柔軟ラバー等があり、プリフォーム型71としては、例えば、金型、木型、樹脂型またはFRP型等を用いることができる。

【0060】

(C) 加熱工程

次に、図7に示すように例えれば熱風などでプリフォーム1の全体を加熱することにより、主に熱可塑性樹脂からなる樹脂材料3が軟化して、プリフォーム1の厚みが減少し、強化繊維基材2と樹脂材料3とを含む各層を部分的に接着させる。

【0061】

また、この加熱工程において、強化繊維基材2を加圧して、強化繊維体積率Vpfを45～62%の範囲内にするのが好ましい。かかるプリフォーム1の加圧方法としては、特に限定するものではないが、特にプリフォーム型71としてバッグ材7と雄型または雌型とを用いる場合には、積層体をプリフォーム型71内に密閉し、プリフォーム型71内を大気圧以下に減圧することにより、大気圧でプリフォーム1を加圧する方法が設備を安価に抑えることができる点から好ましい。また、プリフォーム型71が雄型および雌型である場合には、積層体の厚み方向に対して機械的に加圧する方法を用いても良い。加熱温度は、樹脂材料を可塑化し、強化繊維が移動可能となり、所望の繊維体積含有率に制御出来る点から50～180℃の範囲内であることが好ましい。

【0062】

(D) 冷却工程

次に、積層体全体が所望の厚みになったところで、冷却工程にてプリフォーム1の全体を冷却して、樹脂材料3が固化して、強化繊維基材2が固定される。

【0063】

(E) 穿孔工程

次に、図8に示す通り、穿孔工程において、保護板82の上においてたプリフォーム1の厚み方向に、穿孔針81を使用して、複数の強化繊維基材2を貫通する孔4を形成する。具体的にはまず、前記冷却工程でプリフォームを冷却した後、バッグ材7および加圧板9の覆いを取り外し、プリフォーム1を保護板82を介して型72上に置き直す。そして、穿孔針81をプリフォーム1に適当なピッチで先端が保護板82に届くまで差し込む。この際、穿孔針81を加熱しておくことも効果がある。

【0064】

穿孔工程で使用する穿孔針81の形状としては、特に限定するものではないが、FRPの機械強度と言う視点においては、繊維を切断しにくく、繊維の隙間を貫通し易い形状が好適である。例えば、繊維を切断しないように先端をR加工したものを使用することができる。加えて穿孔針の径は0.3mmから2mmの範囲であることが好ましく、穿孔ピッチは10mmから50mmの範囲であることが好ましい、更に好ましくは穿孔針の径は0.5mmか

ら 1.5 mm の範囲が好ましく、穿孔ピッチは 10 mm から 40 mm の範囲が好ましい。

【0065】

穿孔針 81 を保護するための保護板 82 はたとえば発泡体でもよく、または予め穿孔型 72 に穿孔針 81 に相対応した孔を空けておくことも効果がある。

【0066】

図 9 は、本発明に係るプリフォームの製造方法の第 2 の実施態様であり、積層工程から冷却工程までを説明するための断面図である。以下、各工程毎に説明する。

【0067】

(F) 積層工程

まず、前述の第 1 実施態様と同様に、後工程の穿孔工程に備えて、少なくとも一方の表面に熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料 3 を有する強化纖維糸条によって形成された強化纖維基材 2 をプリフォーム型 71 に複数枚積層する。

【0068】

(G) 貫通工程

次に、ピン 91 が一体化された加圧板 92 を、前記プリフォーム型 71 上に積層された強化纖維基材 2 の上から厚み方向に押圧し、貫通させる。この第 2 の実施の態様においても第 1 の実施の態様と同様に、積層された強化纖維基材 2 とプリフォーム型 71 の間に保護板を配置して、ピン 91 を完全に貫通させる方法を用いることも好ましい。また、ピン 91 は、第 1 の実施態様の穿孔針 81 と同様で特に限定するものではなく、ピン 91 は単独の部品であっても良いし、プリフォーム型 71 と一緒に構成されていても良く、積層工程でピン 91 に強化纖維基材 2 を貫通させながら積層することもできるし、積層された強化纖維基材 2 の上に設置される加圧板 9 と一緒に構成して、加圧板 9 を配置するときに、ピン 91 を貫通させても良い。本発明にかかる製造方法においては、ピン 91 の長さを所望の強化纖維体積含有率 V_{pf} に対応するプリフォームの板厚 T_1 に設定して、プリフォーム 1 の板厚を制御しても良い。積層体厚み T_L のうち、所望のプリフォーム板厚に相当するピン 91 長さ T_P 分の強化纖維基材 2 をピン 91 で貫通する（多くの場合 $T_L \geq T_P$ となる）。

【0069】

(H) 加熱工程

次に、プリフォーム型 71 に配置された、ピン 91 を貫通させた積層体を、バッグ材 7 で覆って周囲をシーラント 5 で密封する。プリフォーム 1 と通気材料 8 で連通された真空ポンプ 6 でバッグ材 7 の内部を減圧状態にして、プリフォーム 1 にはバッグ材 7 内外の差圧により大気圧が負荷される。次に、例えは熱風などで積層体を加熱することにより、主に熱可塑性樹脂からなる樹脂材料 3 が軟化して、プリフォーム 1 の厚みが減少し、強化纖維基材 2 と樹脂材料 3 とを含む各層を部分的に接着する。

【0070】

積層体を加熱・加圧することにより、熱可塑樹脂からなる樹脂材料 3 が軟化、あるいは可塑化して圧力により積層体の板厚が減少する。ピン 91 は積層体の残りの強化纖維基材 2 を貫通して積層体の厚みが T_P になった時に、プリフォーム型 71 と加圧板 9 がピン 91 によりブリッジして板厚の減少が止まる。

【0071】

(I) 冷却工程

次に、前記加熱工程で積層体が所望の厚みになったところで積層体を冷却し、樹脂材料 3 を固化して、強化纖維基材 2 が固定される。

【0072】

(J) 除去工程

次に、バッグ材 7 とともに、強化纖維基材 2 が固定された積層体から加熱板 92、およびピン 91 を除去することにより、貫通孔を有し板厚が T_P に高精度に制御されたプリフォーム 1 が得られる。

【0073】

また、熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料3を有する強化繊維糸条によって形成された強化繊維基材2は、室温における積層体の状態では、熱可塑粒子が可塑化しておらず、強化繊維同士が接着していないため、積層体を移動させる場合などには、基材同士がすべり積層体の形状が保持できない場合がある。しかし、本製造方法においては、積層体にピン91を貫通させる打つことにより、積層体の保持機能と言う新たな効果を得ることができる。

【0074】

また、樹脂材料を有しない強化繊維基材に、強度に影響の無い範囲の大きさの貫通孔を空けた場合、基材に形状の保持機能が無いため、孔が小さいほど、穿孔後纖維のスプリングバックで孔が閉じるという問題があったが、本発明にかかるプリフォームの製造方法では、いずれも、樹脂材料の形状保持機能により、たとえば内径0.5mm程度の小さな孔であっても、樹脂材料の接着による形状保持機能により、十分に孔形状を保持できるところに特徴がある。特に(F)～(J)にかかる製造方法においてはピン91をプリフォーム1内に入れたまま、加熱して熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料を可塑化した後、そのまま冷却して樹脂材料により基材を固定するため、孔が小さくても、ピン91を除去した後にも孔が保持される。

【0075】

すなわち、従来は比較的大きな孔を空けることしか出来なかつたため、FRPに成形した時に強度低下が起つていたが、本発明にかかるプリフォームは、強度に影響の無い大きさの貫通孔であつても、樹脂材料により形状が保持されるため、樹脂の流路としては十分な大きさを有し、かつ、強度低下の無い孔を有するプリフォームが実現できる。

【0076】

次に、上述した本発明のプリフォームを用いた、本発明のFRPの製造法の一実施態様について、図面を参照しながら説明する。

【0077】

図10は、本発明の一実施態様に係るFRPの製造方法の断面図であり、前述した本発明にかかるプリフォーム1にマトリックス樹脂を注入し、成形している様子を示したものである。概略説明すると、まず、(K)セット工程にて、本発明のプリフォームを成形型103上に配置する。次に(L)注入工程にて、液体化しているマトリックス樹脂を、成形型103に注入してプリフォーム1にマトリックス樹脂を含浸させる。さらに、(M)硬化工程にてマトリックス樹脂を硬化させる。以下、各工程毎に説明する。

【0078】

(K)セット工程

まず、図10に示すように、本発明にかかるプリフォーム1を成形型103に配置する。次にプリフォーム1の少なくとも最表面に樹脂拡散媒体105を積層し、プリフォーム1と樹脂拡散媒体105の間に、成形後に樹脂拡散媒体105が簡単に分離できるようにピールプライ104を配置する。次に、樹脂注入口102を介して樹脂ポット101と樹脂拡散媒体105を連通させ、もう一方では、通気材料8を介してプリフォーム1と真空ポンプ6とを連通させる。次にバッグ材7で全体を覆い、シーラントで周囲を密封する。

【0079】

なお、成形型103が少なくとも雄型または雌型のいずれかとバッグ材からなる構成としても良い。バッグ材7を用いた場合、成形型103費を安くすることができ、成形コストが安い製造方法となる。

【0080】

また、成形型103が雄型および雌型を含む2つから形成しても良く、マトリックス樹脂の注入時に大気圧以上の圧力をかけることができるため、短サイクルで成形することができる。

【0081】

(L)注入工程

次に、バッグ材7内を真空ポンプ6で脱気して、真空に保ちながらマトリックス樹脂1

01を注入して、まずマトリックス樹脂を優先的に樹脂拡散媒体105に含浸させ、続いてプリフォーム1の貫通孔4を通り板厚方向に含浸した後、各強化繊維層2の面内（層間）方向に樹脂が拡散して、プリフォーム1全体に樹脂が含浸する。

【0082】

樹脂拡散媒体105としては、例えばメッシュ、金網等などを使用することが好ましく、樹脂拡散媒体105とFRPを成形後に簡単に分離できるようにピールライ104（例えばナイロン製のタフタ）を樹脂拡散媒体105とプリフォーム1との間に積層しておくのが好ましい。

【0083】

(M) 硬化工程

次に、硬化工程にてマトリックス樹脂を硬化させる。

【0084】

また、硬化させる際、硬化効率を上げるために加熱するのが好ましい。必要に応じて、マトリックス樹脂の硬化を確実なものにするために、FRPを再度加熱して硬化するアフターキュア（二次硬化）工程を経てもよい。

【0085】

以上が本発明のFRPの製造方法であるが、従来技術の場合、拡散媒体に拡散したのち、特に厚肉の場合には板厚方向に含浸するのに多大な時間を要するために、樹脂注入時間が非常に長かった。しかし、本発明にかかるプリフォームにおいては、板厚方向をマトリックス樹脂が貫通孔4内を素早く進入し、次いで各基材層の平面方向に含浸するため、ボイドがない状態でまんべんなく含浸でき、全体の含浸時間を大幅に短縮（例えば従来技術の含浸時間の20～50%以内の短時間）することが可能である。よって、短時間の製造サイクルが実現し、従来に比較して、成型コストが安い製造方法が可能となる。また、板厚方向に素早く含浸できるため、従来法では非常に困難であった超厚肉の部材にも対応が可能となる優れた製造方法である。

【0086】

本発明にかかるプリフォームを用いることにより、樹脂の注入成形において、従来樹脂の含浸に多大な時間を要した板厚方向には樹脂が貫通孔を素早く含浸するため、全体の含浸時間を大幅に短縮することが可能であり、短時間の製造サイクルが実現し、従来に比較して、成型コストが安い製造方法が可能となる。また、板厚方向に素早く含浸できるため、従来法では非常に困難であった超厚肉の部材にも対応が可能となった。

【0087】

また、樹脂材料の形態保持機能を利用することにより、強度への影響が十分に無視できる小さい孔であっても、樹脂が含浸するまでは形状が充分に保持されるため、樹脂の流路が確保され、貫通孔を有していても、貫通孔の無いプリフォームと同等の機械強度を得ることができる。

【実施例】

【0088】

以下、本発明の一実施例について、上記図面を参照しながら説明する。

【0089】

実施例1

まず、強化繊維基材2として一方向性炭素繊維織物（東レ株式会社製、品名：CZ8431DP）をサイズ：150mm×150mmに切り出した強化繊維基材2を64枚×3セットを用意した。該織物は強化繊維糸条として炭素繊維T800S（東レ株式会社製、密度：1.8g/m³）を使用した炭素繊維目付190g/m²の一方向性織物であり、表面には熱可塑性樹脂を主成分とする粒子状樹脂材料3が27g/m²の目付で予め付着させてある。

【0090】

これを用いて以下の要領で3種類のプリフォーム1を作成した。

【0091】

上記織物を熱可塑樹脂の付着した面を上にしてSUS製平面型上に（45°／0°／-45°／9

0°) 8sの積層構成で疑似等方積層したものを3セット用意した。

【0092】

それぞれこの状態での強化繊維体積率Vfは次の通りであった。

【0093】

第一セット：48%

第二セット：48%

第三セット：48%

第一のセットをバッグ材7とシーラント5によって密封して内部を真空ポンプ6で減圧した状態にし、設定温度80°Cのオーブンにて織物温度が80±5°Cの温度範囲で120分間加熱した。この後オーブンから取り出して室温まで冷却した後バッグ材7を解放し、プリフォーム1を得た。

【0094】

第二のセットをバッグ材7とシーラント5によって密封して内部を真空ポンプ6で減圧した状態にし、設定80°Cのオーブンにて織物温度が80±5°Cの温度範囲で120分間加熱した。この後オーブンから取り出して室温まで冷却した後バッグ材7を解放した。この基材の下にフォームコアを敷き、上から外径1mmのニードルを積層面に対して垂直に突き刺すことにより貫通孔を形成し、その後ニードルを引き抜くという手順で40mmピッチの貫通孔を全面に施してプリフォーム2を得た。このときプリフォーム2の強化繊維体積率Vfはであった。

【0095】

第三のセットには積層した基材と平面型の間にフォームコアを敷き、基材の上からニードル付きの金属プレート（ニードル径：1mm、ニードルピッチ：40mm）を押しあてて貫通孔を形成し、この状態で全体をバッグ材7とシーラント5によって密封して内部を真空ポンプ6で減圧した状態にし、設定80°Cのオーブンにて織物温度が80±5°Cの温度範囲で120分間加熱した。この後オーブンから取り出して室温まで冷却した後バッグ材7を解放し、ニードル付きプレートを取り外してプリフォーム3を得た。

【0096】

この状態でのそれぞれのプリフォームの強化繊維体積率Vfは次の通りであった。

【0097】

プリフォーム1：54%

プリフォーム2：54%

プリフォーム3：54%

これら3種類のプリフォームをそれぞれ図10に示す通りのコンフィギュレーションにセットした。なお注入するマトリクス樹脂には東レ製TR-A36を使用する。樹脂注入口をクランプで閉じ、密封した内部を真空ポンプ6で減圧した状態にして設定60°Cのオーブン内に投入し、プリフォーム温度、樹脂温度が60±5°Cの温度範囲の時に樹脂注入口のクランプを外して樹脂の注入を開始した。

【0098】

また、各プリフォームの厚さ方向に強化繊維基材2の16枚目、32枚目、48枚目および最下層に、貫通孔の最遠部に樹脂含浸を確認する樹脂センサーを配置した。

【0099】

その結果、プリフォーム1については樹脂注入開始後1時間経過後も樹脂は吸引口に到達せず、その時点で注入口を閉じて注入をうち切った。プリフォーム2および3は樹脂注入開始後40分で、全てのセンサーで樹脂の到達を確認した。この時点で樹脂注入口を閉じ、樹脂硬化のためオーブン温度を130°Cまで0.5°C/分のレートで昇温してプリフォーム温度が130±5°Cの範囲で2時間保持した後室温まで冷却した。

【0100】

これにより成形されたCFRPはプリフォーム2、プリフォーム3を使用した成形品いずれも未含浸はなく、Vfは次の通りであった。

【0101】

プリフォーム2を使用したCFRP: 55%

プリフォーム3を使用したCFRP: 55%

【産業上の利用可能性】

【0102】

本発明は、航空機、自動車、もしくは船舶の輸送機器におけるFRP製構造体を製造するためのプリフォームに適用することがより特徴を發揮できる点から好ましいが、その他、産業用途、スポーツ用途など、広範囲なFRP製部材の製造用途にも適用可能である。

【図面の簡単な説明】

【0103】

【図1】本発明に係るプリフォームの一実施態様の斜視図である。

【図2】図1のプリフォームのA-A線矢視断面図である。

【図3】図2のプリフォームの変形例に係る断面図である。

【図4】図1のプリフォームとは異なる態様の本発明に係るプリフォームの斜視図である。

【図5】図4のプリフォームのB-B線矢視の断面図である。

【図6】本発明に係るFRPの一実施態様の斜視図である。

【図7】本発明に係るプリフォームの製造方法の一実施態様に係る断面図である。

【図8】図7の次工程を示す断面図である。

【図9】本発明に係るプリフォームの製造方法の別の一実施態様に係る断面図である。

。

【図10】図7、9の次工程を示す断面図である。

【符号の説明】

【0104】

1 : プリフォーム

2 : 強化繊維層

3 : 樹脂材料

4 : 貫通孔

5 : シーラント

6 : 真空ポンプ

7 : バッグ材

8 : 通気材料

9 : 加圧板

41 : 段差部(バッドアップ部)

42 : 薄肉部

61 : 貫通孔の跡

71 : プリフォーム型

72 : 突孔型

81 : 突孔針

82 : 保護板

91 : ピン

92 : ピン付き加圧板9

101 : 樹脂ポット

102 : 樹脂注入口

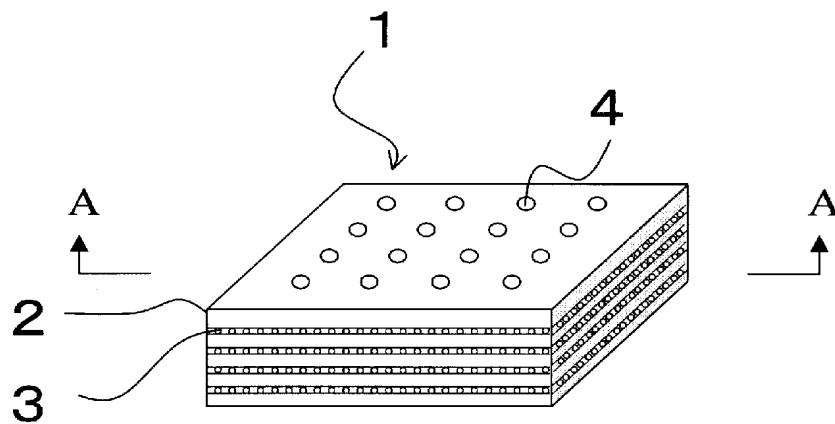
103 : 成形型

104 : ピールプライ

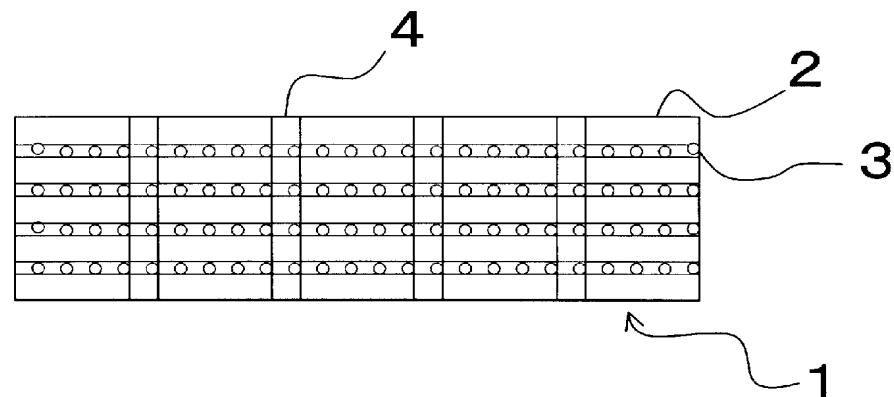
105 : 樹脂拡散媒体

【書類名】 図面

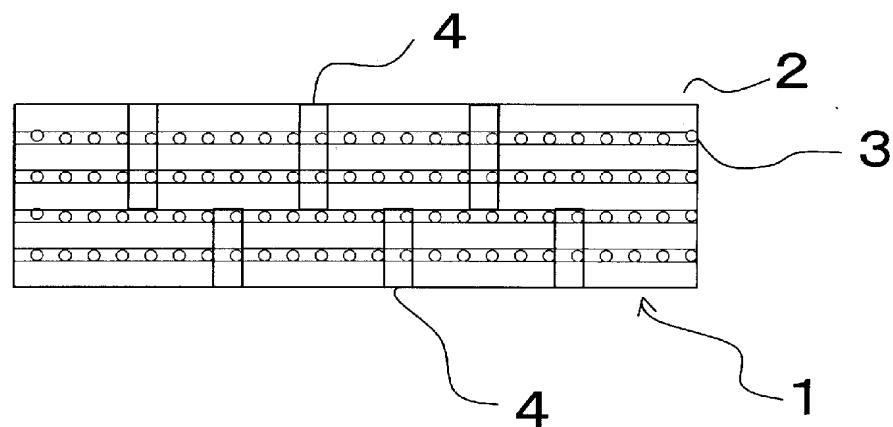
【図 1】



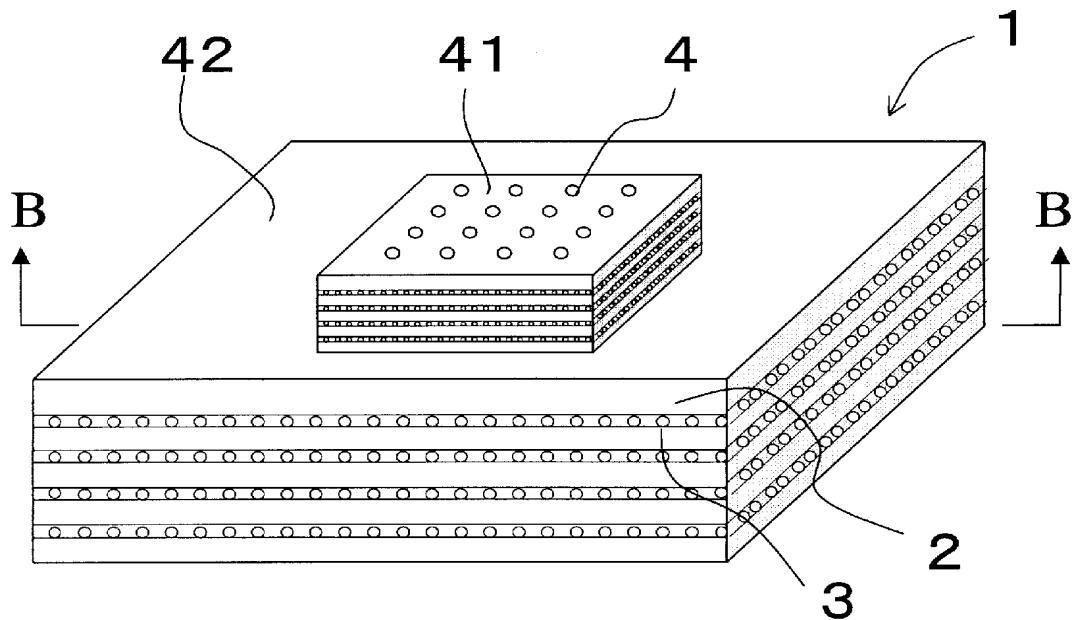
【図 2】



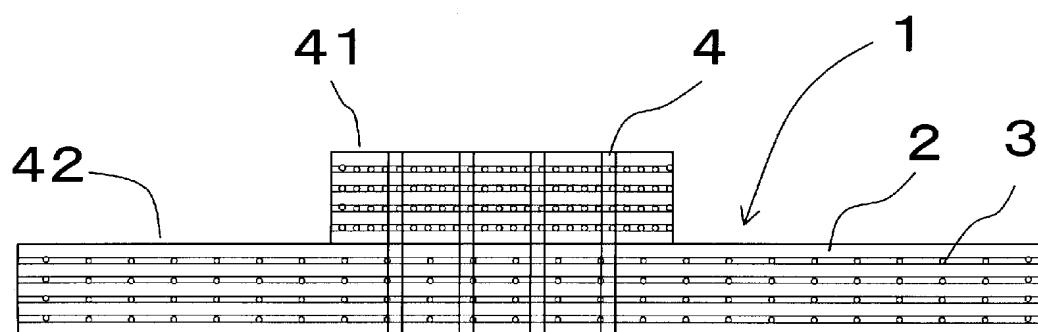
【図 3】



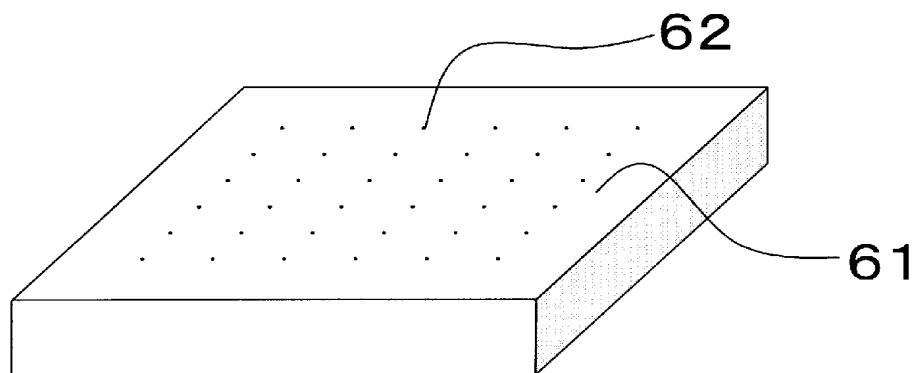
【図 4】



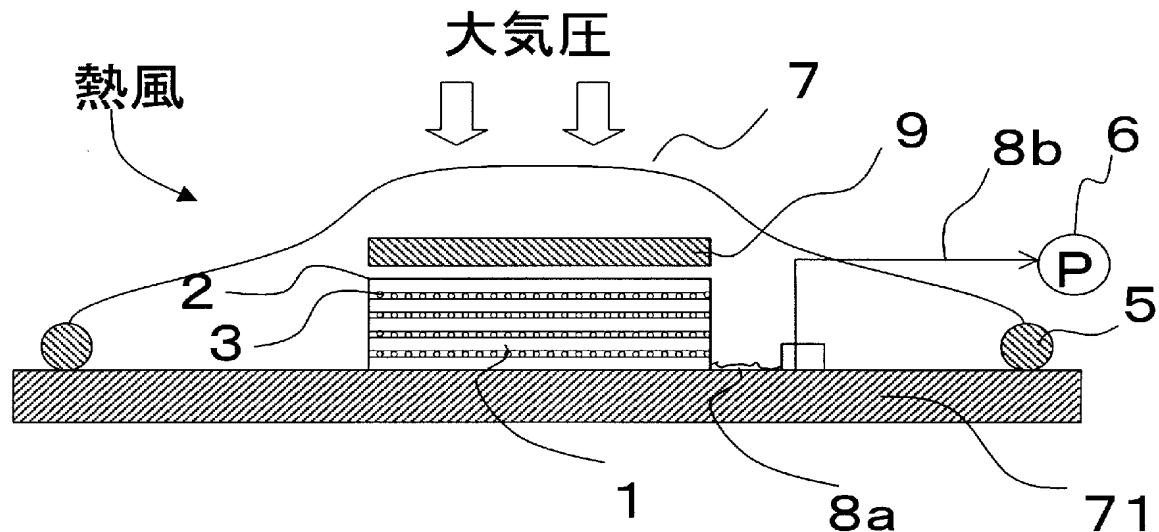
【図 5】



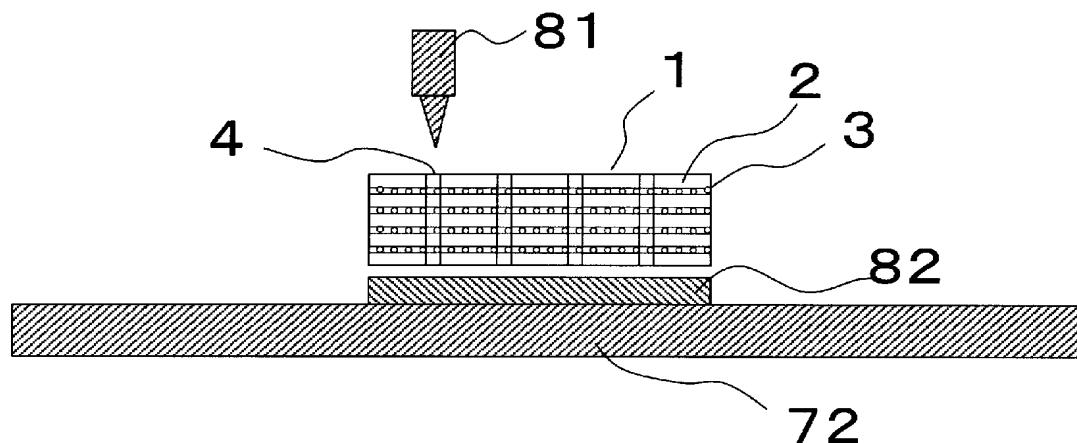
【図 6】



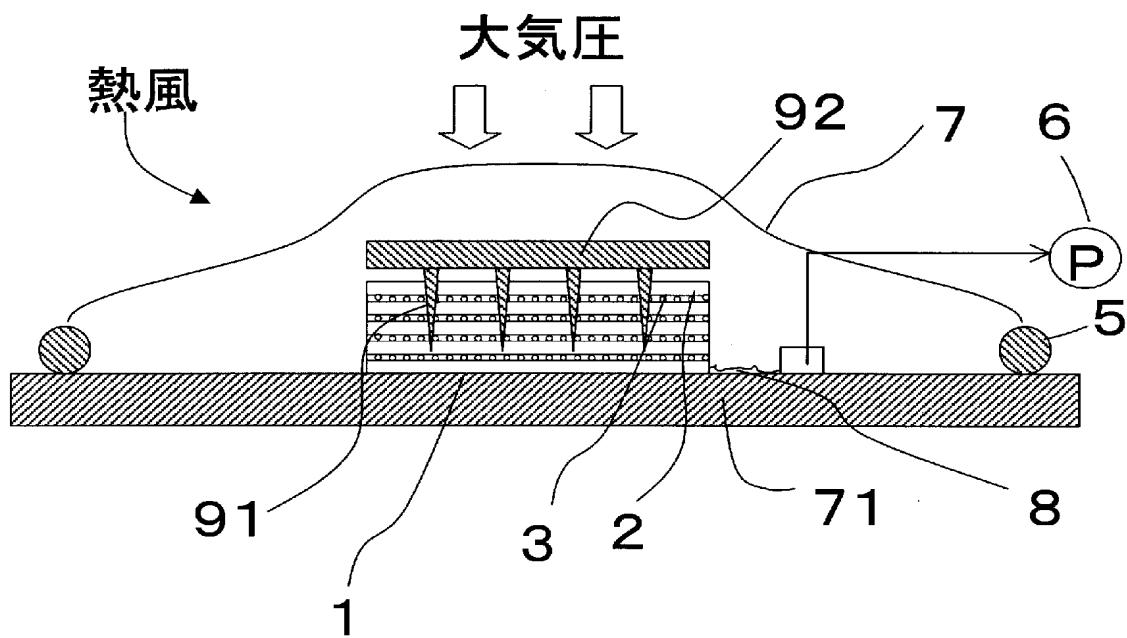
【図 7】



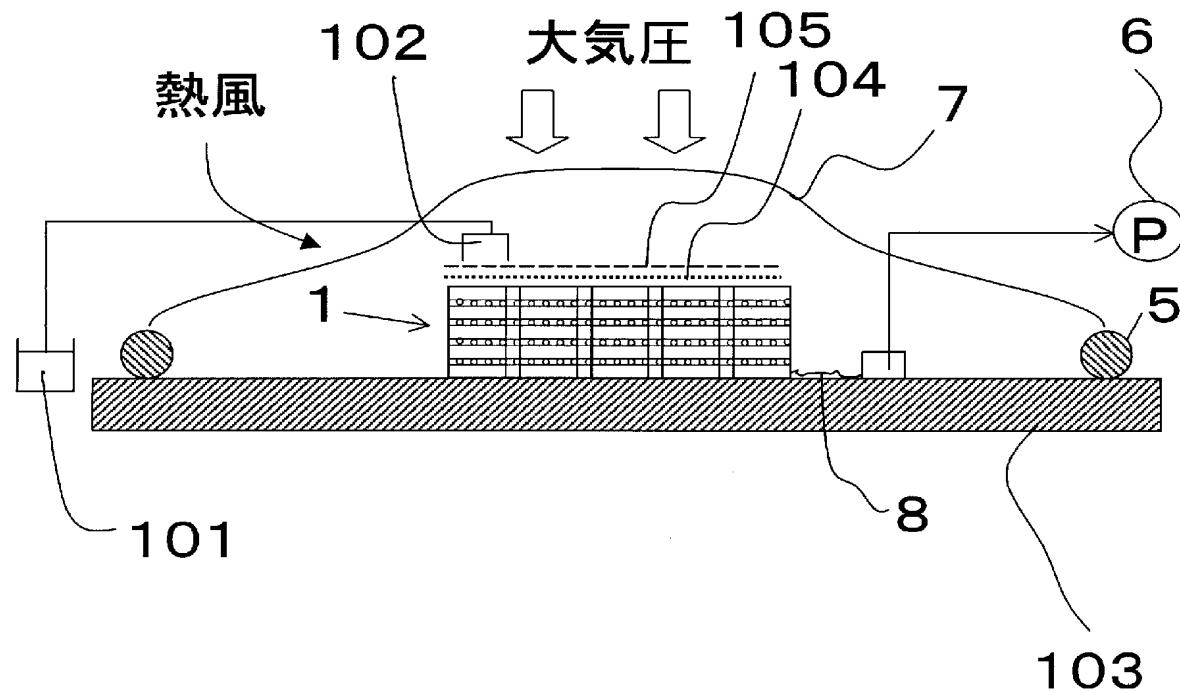
【図 8】



【図 9】



【図 10】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】プリフォームの板厚方向の含浸性を向上させることにより、各種力学特性と、マトリックス樹脂の含浸性の両者ともに優れ、品質がより安定したF R P およびそれに使用されるプリフォーム並びにこれらを高い生産性で製造し得る方法を提供すること。

【解決手段】本発明のプリフォームは、少なくとも強化繊維糸条によって形成された強化繊維基材を複数枚積層してなるプリフォームであって、プリフォーム内の強化繊維基材層間に熱可塑性樹脂を主成分とする樹脂材料を有し、かつ、プリフォームの厚み方向に複数枚の強化繊維基材を貫通する孔が形成されていることを特徴とする。

【選択図】図 4

出願人履歴

0 0 0 0 0 3 1 5 9

20021025

住所変更

東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

東レ株式会社